

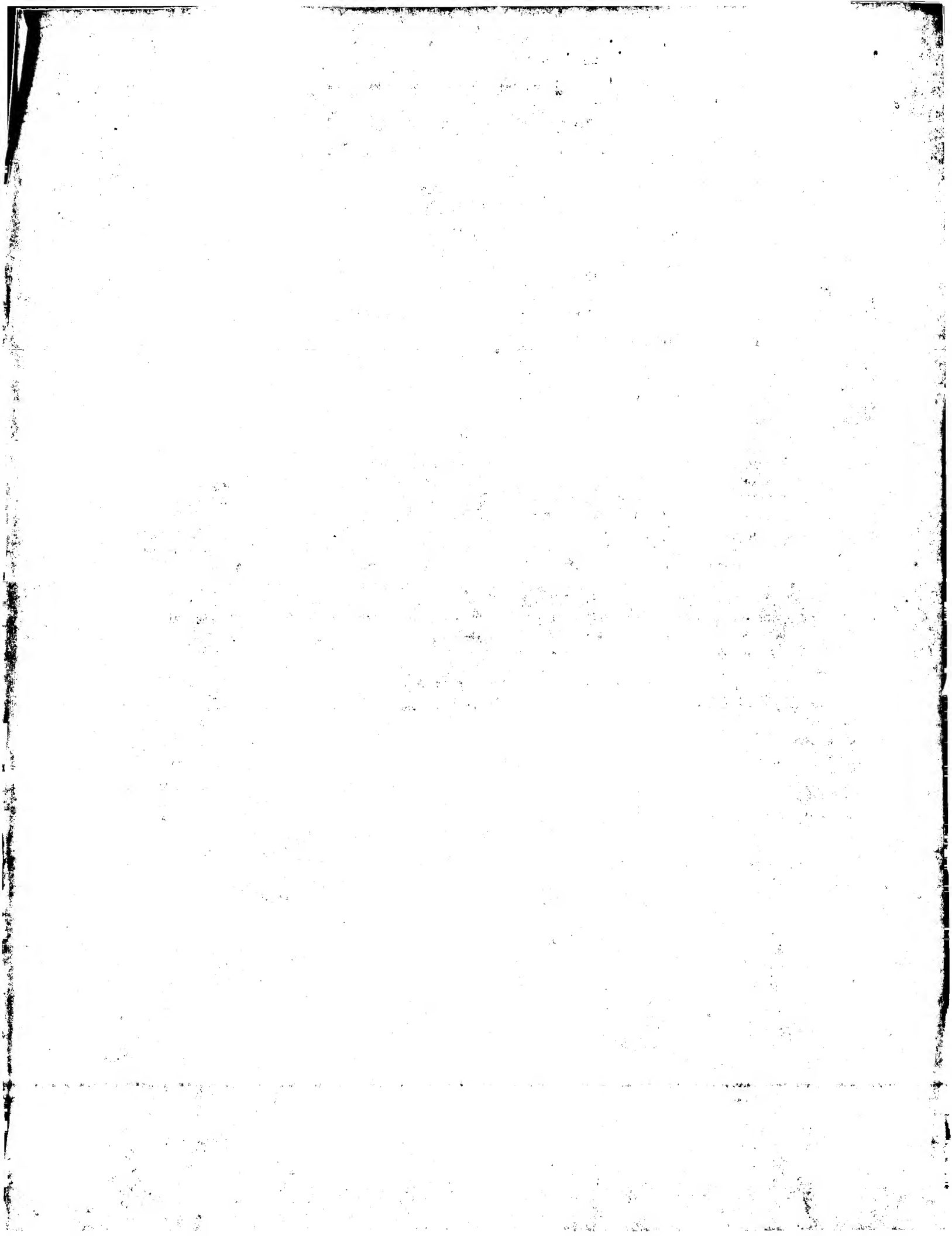
Zirconium alloy nuclear fuel cladding production

Patent Number: FR2769637
Publication date: 1999-04-16
Inventor(s): ISOBE TAKESHI; SUDA YOSHITAKA
Applicant(s): MITSUBISHI MATERIALS CORP (JP)
Requested Patent: ☐ [FR2769637](#)
Application Number: FR19980012784 19981013
Priority Number(s): JP19970278935 19971013; JP19980287800 19981009
IPC Classification: C21D8/00 ; C21D1/26 ; G21C3/07
EC Classification: [G21C3/07](#)
Equivalents: ☐ [JP11194189](#)

Abstract

In the production of nuclear fuel cladding of a zirconium alloy containing Nb or Nb+Ta, annealing is carried out at 550-850 deg C for 1-4 h such that the log of the cumulative anneal parameter is -20 to -15 and satisfies a mathematical relationship relating it to the Nb or Nb+Ta content. Nuclear fuel cladding is produced by subjecting a zirconium alloy of composition (by wt.) 0.2-1.7% Sn, 0.18-0.6% Fe, 0.07-0.4% Cr, 0.05-1.0% Nb, optionally 0.01-0.1% Ta, balance zirconium and impurities, including ≤ 60 ppm N, to hot forging, solution heat treatment, hot extrusion, repeated annealing and cold rolling, and final stress relief annealing, the annealing being carried out at 550-850 deg C for 1-4 h such that the cumulative anneal parameter $\sum SA_i$ (where $\sum SA_i = \sum St_i \text{ asterisk } \exp(-40000/T_i)$) satisfies the relationships of $\log \sum SA_i = -20$ to -15 and $\log \sum SA_i = -18-10X_{Nb}$ to $-15-3.75(X_{Nb}-0.2)$, in which A_i = anneal parameter for the 'i'th anneal, t_i = anneal duration (h) for the 'i'th anneal, T_i = the anneal temperature (K) for the 'i'th anneal and X_{Nb} = the Nb and optional Ta content (in wt.%). An Independent claim is also included for a zirconium alloy nuclear fuel cladding made by the above process.

Data supplied from the esp@cenet database - I2



①9 RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE
PARIS

①1 N° de publication :

2 769 637

(à n'utiliser que pour les
commandes de reproduction)

②1 N° d'enregistrement national :

98 12784

⑤1 Int Cl⁶ : C 21 D 8/00, C 21 D 1/26, G 21 C 3/07

⑫

DEMANDE DE BREVET D'INVENTION

A1

②2 Date de dépôt : 13.10.98.

③0 Priorité : 13.10.97 JP 27893597; 09.10.98 JP 28780098.

④3 Date de mise à la disposition du public de la demande : 16.04.99 Bulletin 99/15.

⑤6 Liste des documents cités dans le rapport de recherche préliminaire : *Ce dernier n'a pas été établi à la date de publication de la demande.*

⑥0 Références à d'autres documents nationaux apparentés :

⑦1 Demandeur(s) : MITSUBISHI MATERIALS CORP — JP.

⑦2 Inventeur(s) : ISOBE TAKESHI et SUDA YOSHITAKA.

⑦3 Titulaire(s) :

⑦4 Mandataire(s) : REGIMBEAU.

⑤4 PROCÉDE POUR FABRIQUER UN ALLIAGE DE ZIRCONIUM POUR GAINAGE COMBUSTIBLE DE REACTEUR NUCLEAIRE AYANT UNE EXCELLENTE RESISTANCE A LA CORROSION ET DES PROPRIETES DE FLUAGE.

⑤7 L'invention fournit un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage. Le procédé consiste à réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud, et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr ayant une composition pondérale de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci. Le recuit est réalisé à une température de 550°C à 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé $\sum A_i = \sum t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations $-20 \leq \log \sum A_i \leq -15$, et $-18-10 \cdot X_{Nb} \leq \log \sum A_i \leq -15-3 \cdot 75$. ($X_{Nb}-0,2$) dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le ième recuit, t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le ième recuit, T_i représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids).

FR 2 769 637 - A1



CONTEXTE DE L'INVENTION1. Champ de l'invention

La présente invention a trait à un procédé pour fabriquer un alliage de Zr pour le gainage de combustible de réacteur nucléaire. Le gainage en alliage de Zr possède une excellente résistance à la corrosion lorsqu'on l'expose à de l'eau chaude sous haute pression ou à de la vapeur et il possède d'excellentes propriétés de fluage.

10 2. Description de la technique apparentée

Un type général de réacteur nucléaire est un réacteur à eau pressurisé (PWR). Un tube de gainage pour un combustible de réacteur de ce type de réacteur est constitué d'un alliage de Zr. Un alliage de Zr typique utilisé dans un tel tube de gainage est le Zircaloy-4 composé de (dans la suite, les pourcentages sont des pourcentages en poids), 1,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,24 % de Fe, 0,07 à 0,13 % de Cr, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles.

20 On a également proposé pour des tubes de gainage les alliages de Zr contenant Nb ou Nb/Ta ayant une excellente résistance à la corrosion. L'alliage de Zr contenant Nd se compose de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et
25 le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins. L'alliage de Zr contenant Nb/Ta se compose de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb,
30 0,01 à 0,1 % de Ta, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins.

La rentabilité d'une centrale nucléaire peut être
35 améliorée en faisant réagir un combustible pendant une longue durée. Ceci demande d'augmenter le temps de

résistance de tube de gainage de combustible dans les réacteurs. Bien que les tubes de gainage susmentionnés constitués d'alliage de Zr contenant Nd ou contenant Nd/Ta ne possèdent pas une durabilité suffisante pour
5 satisfaire un tel besoin puisque ces alliages ne possèdent pas une résistance à la corrosion et des propriétés de fluage suffisamment élevées. Aussi y-a-t-il un besoin de tubes de gainage pour combustible nucléaire à haute durabilité.

10 RÉSUMÉ DE L'INVENTION

Les présents inventeurs ont étudié un procédé pour fabriquer un tube de gainage en alliage de Zr pour du combustible de réacteur nucléaire ayant une résistance à la corrosion et des propriétés de fluage
15 qui sont supérieures à celles des tubes de gainage classiques. Les inventeurs ont découvert qu'on améliore davantage la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage d'un gainage en alliage de Zr obtenu à partir d'un alliage de Zr contenant Nb ou Nb/Ta classique en
20 maîtrisant les conditions du traitement thermique et plus spécifiquement la condition de recuit dans les procédés de fabrication du gainage. Ainsi, le gainage en alliage de Zr résultant peut avoir une longue durée de vie utile.

25 Un premier aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance en corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes :
30 un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage Zr comprenant en poids de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément
35 étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm

ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé à une température de 550°C à 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre
5 de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp (-40\ 000/T_i)$ satisfait les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18 - 10 \cdot X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb} - 0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de
10 recuit pour le i ème recuit,

t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

15 X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids).

Un deuxième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une
20 excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes : réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr
25 comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de
30 relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures d'environ 550°C à environ 850°C pendant 1 à 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp (-40\ 000/T_i)$ satisfait les
35 relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18-10.X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-3,75.(X_{Nb}-0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

5 t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids); et

10 le paramètre de recuit cumulé ΣA_i vérifie de plus les relations:

$$\text{lorsque } 0,05 \leq X_{Nb} \leq 0,5,$$

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18-10.X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10.(X_{Nb}-0,2), \text{ ou}$$

15 $\text{lorsque } 0,5 < X_{Nb},$

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -18-2.(X_{Nb}-0,5).$$

Un troisième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une
20 excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes suivantes : réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr
25 comprenant de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et de 0,01 à 0,1 % de Ta, le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser
30 un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C à environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que
35 le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18 - 10 \cdot X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb+Ta} - 0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

5 t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

10 X_{Nb+Ta} représente la concentration en Nb et en Ta (% en poids).

Un quatrième aspect de la présente invention est un procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, comprenant les étapes de réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 15 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et de 0,01 à 0,1 % de Ta, le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

le recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18 - 10 \cdot X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb+Ta} - 0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

35 t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

Ti représente la température de recuit (K) pour le ième recuit, et

X_{Nb+Ta} représente la concentration en Nb et Ta (% pp); et

5 le paramètre de recuit cumulé ΣA_i vérifie de plus les relations:

lorsque $0,05 \leq X_{Nb+Ta} \leq 0,5$,

$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15$, et X_{Nb+Ta}

$-18-10 \cdot X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10 \cdot (X_{Nb+Ta}-0,2)$, et

10

lorsque $0,5 < X_{Nb+Ta}$,

$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -18-2 \cdot (X_{Nb+Ta}-0,5)$.

Dans ces aspects, il est préférable que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures compris entre environ
15 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 minutes suivi par une trempe à l'aide d'argon gazeux.

De plus, dans ces aspects, il est préférable que ces étapes soient effectuées successivement.

Un cinquième aspect de la présente invention est
20 un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire ayant une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, fabriqué à l'aide d'un des procédés décrits ci-dessus.

BRÈVE DESCRIPTION DES DESSINS

25 La figure 1 est graphique qui représente l'intervalle des conditions de recuit d'un procédé pour faire un gainage en alliage de Zr selon la présente invention; et

La figure 2 est graphique qui représente
30 l'intervalle des conditions de recuit d'un procédé pour faire un gainage en alliage de Zr selon la présente invention.

DESCRIPTION DES MODES DE RÉALISATION PRÉFÉRÉS

En général, on produit un gainage en alliage de
35 Zr pour un combustible de réacteur nucléaire à travers des étapes de fusion, de forgeage de lingot, de

traitement thermique en solution, d'extrusion à chaud, de cycles répétés de recuit et de laminage à froid, de recuit avant un laminage à froid final, un laminage à froid final puis un recuit final de relaxation des
5 contraintes.

Le forgeage de lingot est un forgeage à chaud pour décomposer la structure de la coulée et on le réalise dans un intervalle de températures comprises entre environ 800°C et environ 1 100°C. On réalise le
10 traitement thermique en solution en maintenant l'alliage forgé dans l'intervalle de températures comprises entre environ 1 000°C et environ 1 100°C puis en le refroidissant avec de l'eau de sorte à éliminer une ségrégation microscopique des éléments dans l'alliage.
15 Dans l'extrusion à chaud, on chauffe l'alliage de Zr à une température comprise dans l'intervalle d'environ 600°C à environ 800°C et on l'extrude pour former un tube sans soudure. On réalise le recuit après l'extrusion à chaud et avant le laminage à froid
20 ultérieur, généralement dans un four sous vide. On réalise généralement le laminage à froid ultérieur à l'aide d'un laminoir à pas de pèlerin dans le cas du gainage en alliage de Zr. Le recuit final de relaxation des contraintes s'effectue généralement dans
25 l'intervalle de températures comprises entre environ 450°C et environ 500°C pendant environ 1 à environ 4 heures de manière à relaxer la contrainte dans le gainage en alliage de Zr.

Le procédé pour fabriquer le gainage en alliage
30 de Zr selon la présente invention se caractérise de la manière suivante. Lorsque l'alliage possède une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, et lorsque la
35 teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle est de 60 ppm ou moins, on réalise les recuits après

l'extrusion à chaud et avant le laminage final à froid de manière à satisfaire les conditions décrites dans le premier ou le deuxième aspect susmentionné. Lorsque l'alliage possède une composition (dans la suite en pourcentages pondéraux), de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, 0,01 à 0,1 % de Ta, et que le complément est Zr et des impuretés accidentelles, et lorsque la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle est de 60 ppm ou moins, on réalise les recuits après l'extrusion à chaud et avant le laminage final à froid de manière à satisfaire les conditions décrites dans le troisième ou le quatrième aspect susmentionné.

Le paramètre de recuit cumulé $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ doit satisfaire la relation $-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15$. Lorsque $-20 \leq \log \Sigma A_i$, le gainage de tuyau en alliage de Zr est complètement recuit par les étapes répétées de recuit. Puisque les étapes de recuit répétées doivent être réalisés dans la région de la phase α -zirconium, on doit satisfaire à $\log \Sigma A_i \leq -15$.

Le paramètre de recuit cumulé ΣA_i est fortement affecté par la concentration en Nb (X_{Nb}) et par la concentration totale en Nb+Ta (X_{Nb+Ta}). Ainsi, on doit également satisfaire les conditions suivantes:

$-18 - 10 \cdot X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb} - 0,2)$ pour l'alliage de Zr contenant Nb, ou bien $-18 - 10 \cdot X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb+Ta} - 0,2)$ pour l'alliage de Zr contenant Nb/Ta, les concentrations X_{Nb} et X_{Nb+Ta} étant représentées en pourcentages pondéraux.

On préfère que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i pour l'alliage de Zr contenant Nb soit défini en de plus amples détails dans ce qui suit, parce qu'il dépend de manière significative des concentrations X_{Nb} .

Lorsque $0,05 \leq X_{Nb} \leq 0,5$, on réalise le recuit de manière à satisfaire les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$-18-10.X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10.(X_{Nb}-0,2)$, ou
lorsque $0,5 < X_{Nb}$, on réalise le recuit de
manière à satisfaire les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -18-2.(X_{Nb}-0,5).$$

5 De manière similaire, on préfère que le
paramètre de recuit cumulé ΣA_i pour l'alliage de Zr
contenant Nb/Ta soit défini en de plus amples détails de
la manière suivante:

10 Lorsque $0,5 \leq X_{Nb+Ta} \leq 0,5$, on réalise le recuit
de manière à satisfaire les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18-10.X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10.(X_{Nb+Ta}-0,2), \text{ ou}$$

lorsque $0,5 < X_{Nb+Ta}$, on réalise le recuit de
manière à satisfaire les relations:

15 $-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -18-2.(X_{Nb+Ta}-0,5).$

La figure 1 est un graphique présentant une
gamme de recuits préférés pour produire un gainage en
alliage de Zr contenant Nb pour du combustible de
réacteur nucléaire. L'alliage de Zr contenant Nb possède
20 une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de
Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le
complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la
teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant
de 60 ppm ou moins. Dans la figure 1, l'axe horizontal
25 indique $\log \Sigma A_i$ et l'axe vertical indique la
concentration en Nb (X_{Nb}). On fixe les coordonnées des
points A, B, C, D, E, F, G, H, et I de la manière
suivante:

30 A($\log \Sigma A_i = -15, X_{Nb} = 0,05$)

B($\log \Sigma A_i = -15, X_{Nb} = 0,2$)

C($\log \Sigma A_i = -18, X_{Nb} = 1,0$)

D($\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb} = 1,0$)

E($\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb} = 0,2$)

F($\log \Sigma A_i = -18,5, X_{Nb} = 0,05$)

35 G($\log \Sigma A_i = -18, X_{Nb} = 0,5$)

H($\log \Sigma A_i = -19, X_{Nb} = 1,0$) et

$I(\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb} = 0,5)$

La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb selon le premier aspect de la présente invention est définie par le
5 domaine entouré par les droites AB, BC, CD, DE, EF, et FA dans la figure 1.

La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb selon le deuxième aspect de la présente invention est définie par
10 le domaine entouré par les droites AB, BG, GI, IE, EF et FA pour $0,05 \leq X_{Nb} \leq 0,5$ ou les domaines entourés par les droites GH, HD, DI et IG pour $0,5 < X_{Nb}$.

La figure 2 est un graphique présentant une gamme de recuits préférés pour produire un gainage en
15 alliage de Zr contenant Nb/Ta pour du combustible de réacteur nucléaire. L'alliage de Zr contenant Nb/Ta possède une composition de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, 0,01 à 0,1 % de Ta, et le complément étant Zr et des
20 impuretés accidentelles, dans lequel la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins. Dans la figure 2, l'axe horizontal indique $\log \Sigma A_i$ et l'axe vertical indique la concentration totale en Nb et en Ta (X_{Nb+Ta}). On fixe les coordonnées des points J,
25 K, L, M, N, O, P, Q, et R de la manière suivante:

J($\log \Sigma A_i = -15, X_{Nb+Ta} = 0,05$)

K($\log \Sigma A_i = -15, X_{Nb+Ta} = 0,2$)

L($\log \Sigma A_i = -18, X_{Nb+Ta} = 1,0$)

M($\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb+Ta} = 1,0$)

30 N($\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb+Ta} = 0,2$)

O($\log \Sigma A_i = -18,5, X_{Nb+Ta} = 0,05$)

P($\log \Sigma A_i = -18, X_{Nb+Ta} = 0,5$)

Q($\log \Sigma A_i = -19, X_{Nb+Ta} = 1,0$) et

R($\log \Sigma A_i = -20, X_{Nb+Ta} = 0,5$)

35 La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb/Ta selon le

troisième aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites JK, KL, LM, MN, NO, et OJ dans la figure 2.

La gamme de recuit dans le procédé pour fabriquer le gainage de Zr contenant Nb/Ta selon le quatrième aspect de la présente invention est définie par le domaine entouré par les droites JK, KP, PR, RN, RN et OJ pour $0,05 \leq X_{Nb+Ta} \leq 0,5$ ou les domaines entourés par les droites PQ, QM, MR et RP pour $0,5 < X_{Nb+Ta}$.

Dans les modes de réalisation plus particulièrement préférés du procédé pour fabriquer le gainage en alliage de Zr selon la présente invention, en satisfaisant les conditions de recuit indiquées dans la figure 1 ou la figure 2, le recuit avant le laminage final à froid se réalise dans un intervalle de températures compris entre environ 650°C et environ 770°C pendant une durée courte de manière significative de 1 à 10 minutes, puis on trempe le gainage avec de l'argon gazeux. Pour réaliser un tel recuit, on introduit un volume réduit de gainage dans un récipient que l'on maintient essentiellement à une température élevée donnée pour chauffer rapidement le gainage puis on introduit de l'argon gazeux de grande pureté dans le récipient pour refroidir rapidement le gainage.

On décrit à présent les motifs de limitation de la gamme de composition de l'alliage de Zr selon la présente invention.

(A) Sn

L'étain (Sn) améliore la résistance de l'alliage lorsque sa teneur est de 0,2 % ou plus. D'autre part, la résistance à la corrosion de l'alliage diminue de manière significative lorsque la teneur est supérieure à 1,7 %. Ainsi, la teneur en Sn est fixée entre 0,2 et 1,7 %.

(B) Fe et Cr

Une combinaison de ces composants contribue à améliorer la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage de l'alliage lorsque la teneur en Fe est de 0,18 % ou plus et que la teneur en Cr est de 0,07 % ou plus. Toutefois, la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en Fe est supérieure à 0,6 % et que la teneur en Cr est supérieure à 0,4 %. Ainsi, la teneur en Fe est fixée entre 0,18 et 0,6 % et la teneur en Cr est fixée entre 0,07 et 0,4 %.

10 (C)Nb et Ta

Ces composants contribuent à améliorer davantage la résistance à la corrosion et les propriétés de fluage de l'alliage lorsque la teneur en Nb est de 0,05 % ou plus ou que la teneur en Ta est de 0,01 % ou plus. Toutefois, la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en Nb est supérieure à 1,0 % et que la teneur en Ta est supérieure à 0,1 %. Ainsi, la teneur en Nb est fixée entre 0,05 et 1,0 %, et la teneur en Ta est fixée entre 0,01 et 0,1 %.

20 (D)N en tant qu'impureté accidentelle

L'azote (N) est un composant nuisible de manière significative et il détériore la résistance à la corrosion de l'alliage. Puisque la résistance à la corrosion diminue de manière significative lorsque la teneur en N est supérieure à 60 ppm, la limite supérieure de la teneur en N est fixée à 60 ppm.

On va à présent décrire en de plus amples détails le procédé pour fabriquer le gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire selon la présente invention en se basant sur ce qui suit.

EXEMPLES

On a préparé de la manière suivante des lingots d'alliage de Zr de 1 à 64 ayant des compositions indiquées dans les tableaux 1 à 6. On a mélangé une éponge de Zr ayant une pureté de 99,8 % et Sn, Fe, Cr, Nb et Ta granulaire ayant chacun une pureté de 99,9 % ou

plus en se basant sur les compositions pour former des électrodes. On a fondu les électrodes dans un four à arc sous vide du type à électrode consommable en vue de former des lingots d'alliage de Zr.

5

| Tableau 1 | | | | | | | |
|----------------------------|----|---|-------|-------|-------|----|------------|
| Type | | Composition (% en poids) (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 1 | 1,13 | 0,22 | 0,11 | 0,053 | - | 32 |
| | 2 | 1,02 | 0,22 | 0,10 | 0,11 | - | 29 |
| | 3 | 1,66 | 0,21 | 0,11 | 0,21 | - | 25 |
| | 4 | 1,21 | 0,21 | 0,11 | 0,22 | - | 30 |
| | 5 | 0,95 | 0,183 | 0,11 | 0,21 | - | 34 |
| | 6 | 0,97 | 0,37 | 0,11 | 0,20 | - | 28 |
| | 7 | 0,99 | 0,58 | 0,11 | 0,19 | - | 31 |
| | 8 | 1,01 | 0,21 | 0,075 | 0,20 | - | 26 |
| | 9 | 0,92 | 0,21 | 0,20 | 0,22 | - | 33 |
| | 10 | 0,97 | 0,21 | 0,38 | 0,21 | - | 29 |
| | 11 | 0,98 | 0,44 | 0,23 | 0,22 | - | 30 |

| Tableau 2 | | | | | | | |
|----------------------------|----|---|-------|-------|------|----|------------|
| Type | | Composition (% en poids) | | | | | |
| | | (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 12 | 0,94 | 0,58 | 0,39 | 0,20 | - | 35 |
| | 13 | 0,75 | 0,20 | 0,10 | 0,19 | - | 32 |
| | 14 | 0,49 | 0,187 | 0,11 | 0,22 | - | 33 |
| | 15 | 0,49 | 0,39 | 0,11 | 0,21 | - | 27 |
| | 16 | 0,49 | 0,57 | 0,11 | 0,19 | - | 41 |
| | 17 | 0,49 | 0,21 | 0,078 | 0,20 | - | 30 |
| | 18 | 0,49 | 0,21 | 0,22 | 0,21 | - | 55 |
| | 19 | 0,49 | 0,21 | 0,39 | 0,20 | - | 28 |
| | 20 | 0,49 | 0,41 | 0,22 | 0,20 | - | 25 |
| | 21 | 0,49 | 0,58 | 0,38 | 0,22 | - | 31 |
| | 22 | 0,24 | 0,21 | 0,11 | 0,20 | - | 34 |

| Tableau 3 | | | | | | | |
|-------------------------|----|---|-------|-------|------|----|------------|
| Type | | Composition (% en poids) | | | | | |
| | | (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 23 | 0,85 | 0,20 | 0,09 | 0,36 | - | 26 |
| | 24 | 0,77 | 0,184 | 0,11 | 0,49 | - | 33 |
| | 25 | 0,81 | 0,38 | 0,11 | 0,48 | - | 29 |
| | 26 | 0,80 | 0,57 | 0,11 | 0,47 | - | 30 |
| | 27 | 0,80 | 0,19 | 0,075 | 0,49 | - | 57 |
| | 28 | 0,79 | 0,19 | 0,20 | 0,48 | - | 40 |
| | 29 | 0,77 | 0,19 | 0,36 | 0,49 | - | 31 |
| | 30 | 0,78 | 0,41 | 0,20 | 0,47 | - | 28 |
| | 31 | 0,81 | 0,58 | 0,37 | 0,49 | - | 33 |
| | 32 | 0,49 | 0,20 | 0,11 | 0,49 | - | 30 |
| | 33 | 0,21 | 0,183 | 0,11 | 0,48 | - | 28 |

| Tableau 4 | | | | | | | |
|-------------------------|----|---|------|-------|------|----|------------|
| Type | | Composition (% en poids) (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 34 | 0,22 | 0,38 | 0,11 | 0,49 | - | 27 |
| | 35 | 0,20 | 0,57 | 0,11 | 0,48 | - | 31 |
| | 36 | 0,21 | 0,20 | 0,076 | 0,49 | - | 30 |
| | 37 | 0,22 | 0,20 | 0,19 | 0,49 | - | 35 |
| | 38 | 0,23 | 0,20 | 0,38 | 0,48 | - | 27 |
| | 39 | 0,21 | 0,40 | 0,21 | 0,49 | - | 29 |
| | 40 | 0,22 | 0,59 | 0,38 | 0,49 | - | 32 |
| | 41 | 0,77 | 0,21 | 0,11 | 0,75 | - | 28 |
| | 42 | 0,52 | 0,21 | 0,11 | 0,75 | - | 27 |
| | 43 | 1,01 | 0,19 | 0,10 | 0,98 | - | 33 |
| | 44 | 0,23 | 0,19 | 0,10 | 0,99 | - | 35 |

| Tableau 5 | | | | | | | |
|-------------------------|----|---|-------|-------|-------|-------|------------|
| Type | | Composition (% en poids) (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 45 | 1,15 | 0,21 | 0,10 | 0,051 | 0,013 | 25 |
| | 46 | 1,65 | 0,20 | 0,10 | 0,15 | 0,06 | 29 |
| | 47 | 0,95 | 0,183 | 0,11 | 0,16 | 0,05 | 28 |
| | 48 | 0,97 | 0,38 | 0,12 | 0,12 | 0,09 | 35 |
| | 49 | 0,97 | 0,57 | 0,09 | 0,18 | 0,02 | 31 |
| | 50 | 0,99 | 0,20 | 0,074 | 0,15 | 0,05 | 56 |
| | 51 | 1,01 | 0,20 | 0,19 | 0,13 | 0,08 | 45 |
| | 52 | 0,96 | 0,21 | 0,39 | 0,17 | 0,02 | 34 |
| | 53 | 0,98 | 0,43 | 0,21 | 0,14 | 0,06 | 27 |
| | 54 | 0,97 | 0,59 | 0,38 | 0,11 | 0,09 | 30 |
| | 55 | 0,25 | 0,20 | 0,10 | 0,15 | 0,05 | 31 |

| Tableau 6 | | | | | | | |
|-------------------------|----|---|-------|-------|------|------|------------|
| Type | | Composition (% en poids) (Complément: Zr et impuretés accidentelles) | | | | | |
| | | Sn | Fe | Cr | Nb | Ta | N (ppm) |
| Lingot en alliage Zr | 56 | 0,79 | 0,182 | 0,11 | 0,48 | 0,01 | 28 |
| | 57 | 0,77 | 0,37 | 0,12 | 0,43 | 0,05 | 26 |
| | 58 | 0,81 | 0,58 | 0,12 | 0,41 | 0,08 | 33 |
| | 59 | 0,80 | 0,20 | 0,073 | 0,47 | 0,02 | 52 |
| | 60 | 0,79 | 0,21 | 0,21 | 0,44 | 0,05 | 28 |
| | 61 | 0,80 | 0,20 | 0,37 | 0,40 | 0,08 | 40 |
| | 62 | 0,78 | 0,43 | 0,19 | 0,45 | 0,03 | 29 |
| | 63 | 0,79 | 0,57 | 0,36 | 0,43 | 0,06 | 30 |
| | 64 | 0,26 | 0,20 | 0,11 | 0,93 | 0,05 | 32 |

EXEMPLE 1

On a fait subir un forgeage à 1 010°C à des
 5 lingots d'alliage de Zr, 1 à 64, indiqués dans les
 tableaux 1 à 6, afin de décomposer la structure de la
 coulée, à un chauffage à 1 010°C, à une trempe avec de
 l'eau pour un traitement thermique en solution, à un
 usinage à la machine pour éliminer le tartre à base
 10 d'oxyde, une extrusion à chaud à 600°C, un usinage à la
 machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, trois
 cycles de recuit et de laminage à froid dans les
 conditions de $\log \Sigma A_i$ indiquées dans les tableaux 7 à 12
 et un recuit final de relaxation des contraintes à 450°C
 15 pendant 2 heures. On a produit des tubes de gainage en
 alliage de Zr, 1 à 64, ayant une épaisseur de 0,5 mm. On
 a soumis les tubes de gainage résultants aux tests
 suivants.

Test de corrosion

On a découpé une épreuve d'essai ayant une longueur de 50 mm à partir de chaque gainage en alliage de Zr, on l'a lavée avec de l'acétone et on l'a immergée dans de l'eau pure d'une tension de vapeur saturée de 190 atmosphères à 360°C pendant 900 jours dans un autoclave statique. On indique dans les tableaux 7 à 12 le poids accru de chaque éprouvette par unité de surface [(poids après les essais - poids avant les essais)/surface de l'éprouvette] (unité: mg/dm²).

Essai de fluage

On a mis sous pression de manière interne chaque éprouvette d'essai provenant du gainage en alliage de Zr et on l'a maintenue à une température de 400°C pendant 15 jours sous une contrainte de 12 kg/mm². On a mesuré le diamètre extérieur de l'éprouvette avec un calibre à laser pour diamètre. On a calculé la déformation de fluage (en %) à partir de l'augmentation du diamètre externe en utilisant l'équation [(diamètre extérieur après les essais - diamètre extérieur avant les essais)/diamètre extérieur avant les essais] x 100. On indique également les résultats dans les tableaux 7 à 12.

EXEMPLE 2

On a soumis les lingots en alliage de Zr, 1 à 64, indiqués dans les tableaux 1 à 6, à un forgeage à 1 010°C afin de décomposer la structure de la coulée, à un chauffage à 1 010°C, à une trempe avec de l'eau pour un traitement thermique en solution, à un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, à une extrusion à chaud à 600°C, à un usinage à la machine pour éliminer le tartre à base d'oxyde, à deux cycles de recuit et de laminage à froid dans les conditions de log[Ai] indiquées dans les tableaux 13 à 21, à un chauffage et à un refroidissement avec de l'argon gazeux dans les conditions indiquées dans les tableaux 13 à 21,

à un laminage final à froid puis à un recuit final de relaxation des contraintes dans les mêmes conditions que dans l'exemple 1. On a produit des tubes de gainage en alliage de Zr, 65 à 128, ayant une épaisseur de 0,5 mm.

- 5 On a soumis les tubes de gainage résultants à l'essai de corrosion et à l'essai de fluage comme dans l'exemple 1. On indique également les résultats dans les tableaux 13 à 21.

- 10 Tel que décrit ci-dessus, le gainage en alliage de Zr obtenu par le procédé selon la présente invention possède une excellente résistance à la corrosion et d'excellentes propriétés de fluage, en conséquence on peut l'utiliser comme gainage de combustible nucléaire pendant une longue durée.

| Tableau 7 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 1 | 1 | -16,8 | 294 | 2,66 |
| | 2 | 2 | -16,8 | 198 | 2,49 |
| | 3 | 3 | -16,0 | 234 | 1,88 |
| | 4 | 4 | -15,1 | 233 | 1,71 |
| | 5 | 5 | -17,9 | 185 | 2,93 |
| | 6 | 6 | -16,8 | 171 | 2,44 |
| | 7 | 7 | -16,0 | 171 | 1,86 |
| | 8 | 8 | -15,1 | 202 | 1,82 |
| | 9 | 9 | -17,9 | 189 | 2,85 |
| | 10 | 10 | -16,8 | 191 | 2,40 |
| | 11 | 11 | -16,0 | 189 | 1,86 |

| Tableau 8 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|--------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 12 | 12 | -15,1 | 206 | 1,65 |
| | 13 | 13 | -16,8 | 162 | 2,62 |
| | 14 | 14 | -16,0 | 150 | 2,22 |
| | 15 | 15 | -16,8 | 141 | 2,67 |
| | 16 | 16 | -16,8 | 135 | 2,63 |
| | 17 | 17 | -16,8 | 149 | 2,71 |
| | 18 | 18 | -16,8 | 159 | 2,66 |
| | 19 | 19 | -16,8 | 163 | 2,64 |
| | 20 | 20 | -16,8 | 151 | 2,61 |
| | 21 | 21 | -17,9 | 152 | 2,94 |
| | 22 | 22 | -16,0 | 133 | 2,33 |

| Tableau 9 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|--------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 23 | 23 | -17,9 | 246 | 2,84 |
| | 24 | 24 | -17,9 | 251 | 2,69 |
| | 25 | 25 | -17,9 | 243 | 2,63 |
| | 26 | 26 | -17,9 | 240 | 2,57 |
| | 27 | 27 | -17,9 | 255 | 2,73 |
| | 28 | 28 | -17,9 | 262 | 2,66 |
| | 29 | 29 | -17,9 | 267 | 2,61 |
| | 30 | 30 | -17,9 | 249 | 2,60 |
| | 31 | 31 | -17,9 | 266 | 2,54 |
| | 32 | 32 | -17,9 | 234 | 2,75 |
| | 33 | 33 | -17,9 | 212 | 2,81 |

| Tableau 10 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 34 | 34 | -17,9 | 208 | 2,77 |
| | 35 | 35 | -17,9 | 202 | 2,77 |
| | 36 | 36 | -17,9 | 216 | 2,80 |
| | 37 | 37 | -17,9 | 221 | 2,77 |
| | 38 | 38 | -17,9 | 223 | 2,74 |
| | 39 | 39 | -17,9 | 204 | 2,79 |
| | 40 | 40 | -17,9 | 210 | 2,77 |
| | 41 | 41 | -17,9 | 291 | 2,66 |
| | 42 | 42 | -17,9 | 290 | 2,72 |
| | 43 | 43 | -18,8 | 294 | 2,50 |
| | 44 | 44 | -18,8 | 250 | 2,72 |

| Tableau 11 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|--------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 45 | 45 | -16,8 | 284 | 2,65 |
| | 46 | 46 | -17,9 | 241 | 2,65 |
| | 47 | 47 | -17,9 | 180 | 2,89 |
| | 48 | 48 | -17,9 | 177 | 2,83 |
| | 49 | 49 | -17,9 | 171 | 2,81 |
| | 50 | 50 | -17,9 | 180 | 2,91 |
| | 51 | 51 | -17,9 | 193 | 2,91 |
| | 52 | 52 | -17,9 | 201 | 2,82 |
| | 53 | 53 | -17,9 | 192 | 2,85 |
| | 54 | 54 | -17,9 | 188 | 2,81 |
| | 55 | 55 | -16,8 | 129 | 2,83 |

| Tableau 12 | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|--------------|--|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| Procédé de cette invention | 56 | 56 | -17,9 | 248 | 2,72 |
| | 57 | 57 | -17,9 | 233 | 2,72 |
| | 58 | 58 | -17,9 | 252 | 2,61 |
| | 59 | 59 | -17,9 | 261 | 2,81 |
| | 60 | 60 | -17,9 | 260 | 2,67 |
| | 61 | 61 | -17,9 | 264 | 2,71 |
| | 62 | 62 | -17,9 | 252 | 2,75 |
| | 63 | 63 | -17,9 | 281 | 2,51 |
| | 64 | 64 | -17,9 | 248 | 2,70 |

| Tableau 13 | | | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 65 | 1 | -17,8 | 720 | 5,2 | 289 | 2,98 |
| | 66 | 2 | -17,8 | 725 | 3,0 | 226 | 2,93 |
| | 67 | 3 | -19,5 | 670 | 2,2 | 291 | 2,83 |
| | 68 | 4 | -18,8 | 675 | 5,0 | 239 | 2,85 |
| | 69 | 5 | -18,8 | 680 | 6,1 | 220 | 2,91 |
| | 70 | 6 | -18,8 | 700 | 3,0 | 212 | 2,84 |
| | 71 | 7 | -18,8 | 720 | 1,2 | 207 | 2,81 |

| Tableau 14 | | | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|--|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 72 | 8 | -17,8 | 730 | 2,5 | 188 | 2,88 |
| | 73 | 9 | -17,8 | 690 | 8,3 | 191 | 2,89 |
| | 74 | 10 | -18,8 | 660 | 5,5 | 234 | 2,82 |
| | 75 | 11 | -17,8 | 740 | 2,3 | 192 | 2,84 |
| | 76 | 12 | -17,8 | 770 | 1,0 | 194 | 2,88 |
| | 77 | 13 | -17,8 | 710 | 9,5 | 175 | 2,99 |
| | 78 | 14 | -17,8 | 725 | 3,0 | 159 | 2,98 |

| Tableau 15 | | | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|--|-------------------------------|---|--|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | Σ Ai | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 79 | 15 | -17,8 | 720 | 5,5 | 143 | 2,94 |
| | 80 | 16 | -17,8 | 760 | 1,8 | 133 | 2,92 |
| | 81 | 17 | -17,8 | 700 | 9,8 | 155 | 2,97 |
| | 82 | 18 | -18,8 | 680 | 4,5 | 194 | 2,93 |
| | 83 | 19 | -17,8 | 730 | 5,0 | 169 | 2,99 |
| | 84 | 20 | -17,8 | 735 | 4,5 | 155 | 2,98 |
| | 85 | 21 | -17,9 | 720 | 5,0 | 161 | 2,93 |

| Tableau 16 | | | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|--|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 86 | 22 | -17,8 | 720 | 5,0 | 133 | 2,97 |
| | 87 | 23 | -17,8 | 700 | 8,8 | 243 | 2,85 |
| | 88 | 24 | -17,8 | 710 | 8,0 | 260 | 2,72 |
| | 89 | 25 | -17,8 | 730 | 3,2 | 251 | 2,64 |
| | 90 | 26 | -17,8 | 725 | 3,5 | 250 | 2,71 |
| | 91 | 27 | -17,8 | 760 | 1,0 | 259 | 2,77 |
| | 92 | 28 | -17,8 | 750 | 1,2 | 277 | 2,75 |

| Tableau 17 | | | | | | | |
|----------------------------------|----|----------------------------------|-------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 93 | 29 | -17,8 | 710 | 5,0 | 275 | 2,67 |
| | 94 | 30 | -17,8 | 700 | 9,0 | 266 | 2,71 |
| | 95 | 31 | -17,8 | 730 | 2,5 | 281 | 2,73 |
| | 96 | 32 | -17,8 | 720 | 5,0 | 241 | 2,81 |
| | 97 | 33 | -17,8 | 740 | 1,1 | 222 | 2,88 |
| | 98 | 34 | -17,8 | 730 | 2,6 | 223 | 2,82 |
| | 99 | 35 | -17,8 | 720 | 4,8 | 201 | 2,89 |

| Tableau 18 | | | | | | | |
|----------------------------------|-----|----------------------------------|--------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 100 | 36 | -17,8 | 725 | 3,3 | 223 | 2,81 |
| | 101 | 37 | -17,8 | 710 | 5,0 | 225 | 2,82 |
| | 102 | 38 | -17,8 | 700 | 7,5 | 220 | 2,79 |
| | 103 | 39 | -17,8 | 740 | 1,2 | 207 | 2,81 |
| | 104 | 40 | -17,8 | 720 | 4,0 | 221 | 2,83 |
| | 105 | 41 | -18,8 | 650 | 8,1 | 282 | 2,94 |
| | 106 | 42 | -18,8 | 680 | 2,0 | 249 | 2,85 |

| Tableau 19 | | | | | | | |
|----------------------------------|-----|----------------------------------|-------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 107 | 43 | -18,8 | 690 | 1,0 | 299 | 2,82 |
| | 108 | 44 | -18,8 | 660 | 5,0 | 262 | 2,91 |
| | 109 | 45 | -17,8 | 720 | 4,0 | 283 | 2,94 |
| | 110 | 46 | -17,8 | 725 | 3,0 | 242 | 2,66 |
| | 111 | 47 | -17,8 | 730 | 2,5 | 182 | 2,91 |
| | 112 | 48 | -17,8 | 710 | 7,0 | 174 | 2,81 |
| | 113 | 49 | -17,8 | 730 | 3,0 | 176 | 2,79 |

| Tableau 20 | | | | | | | |
|----------------------------------|-----|----------------------------------|--------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣA_i | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 114 | 50 | -17,8 | 735 | 2,0 | 182 | 2,72 |
| | 115 | 51 | -17,8 | 710 | 5,2 | 188 | 2,88 |
| | 116 | 52 | -17,8 | 715 | 4,5 | 201 | 2,76 |
| | 117 | 53 | -17,8 | 720 | 3,8 | 197 | 2,79 |
| | 118 | 54 | -17,8 | 700 | 9,0 | 189 | 2,84 |
| | 119 | 55 | -17,8 | 705 | 5,5 | 142 | 2,98 |
| | 120 | 56 | -17,8 | 725 | 2,0 | 247 | 2,76 |

| Tableau 21 | | | | | | | |
|----------------------------------|-----|----------------------------------|-------------------|---|-------------------------------|---|---|
| Type | | Lingot en alliage de Zr | ΣAi | Condition de recuit avant le laminage final à froid | | Augmentation de poids par unité de surface de l'éprouvette d'essai après l'essai de corrosion (mg/dm ²) | Déformation de fluage après l'essai de fluage % |
| | | | | Température de chauffage (°C) | Durée de maintien (min) | | |
| Procédé de cette invention | 121 | 57 | -17,8 | 730 | 2,0 | 232 | 2,62 |
| | 122 | 58 | -18,8 | 670 | 3,5 | 190 | 2,81 |
| | 123 | 59 | -17,8 | 695 | 9,0 | 255 | 2,72 |
| | 124 | 60 | -17,8 | 715 | 4,0 | 249 | 2,79 |
| | 125 | 61 | -17,8 | 730 | 2,2 | 272 | 2,66 |
| | 126 | 62 | -17,8 | 720 | 3,0 | 272 | 2,73 |
| | 127 | 63 | -17,8 | 725 | 2,6 | 287 | 2,75 |
| | 128 | 64 | -18,8 | 680 | 2,5 | 267 | 2,94 |

RE V E N D I C A T I O N S

1. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

$$\begin{aligned} & -20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et} \\ & -18 - 10 \cdot X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15 - 3,75 \cdot (X_{Nb} - 0,2) \end{aligned}$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids).

2. Procédé selon la revendication 1 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

3. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire

comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en
 5 poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des
 10 contraintes sur celui-ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i =$
 15 $\Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18-10 \cdot X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-3,75 \cdot (X_{Nb}-0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

20 t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

25 X_{Nb} représente la concentration en Nb (% en poids) et

le paramètre de recuit cumulé ΣA_i vérifie de plus les relations:

$$\text{lorsque } 0,05 \leq X_{Nb} \leq 0,5,$$

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$30 \quad -18-10 \cdot X_{Nb} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10 \cdot (X_{Nb}-0,2), \text{ ou}$$

$$\text{lorsque } 0,5 < X_{Nb},$$

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -18-2 \cdot (X_{Nb}-0,5).$$

4. Procédé selon la revendication 3 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans
 35 un intervalle de températures comprises entre environ

650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10 Minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

5. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire
 5 comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à
 10 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et 0,01 à 0,1 % de Ta et le complément étant Zr et des impuretés accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-
 15 ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i =$
 20 $\Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

$$-20 \leq \log \Sigma A_i \leq -15, \text{ et}$$

$$-18-10 \cdot X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-3,75 \cdot (X_{Nb+Ta}-0,2)$$

dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

25 t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

30 X_{Nb+Ta} représente la concentration en Nb et Ta (% en poids).

6. Procédé selon la revendication 5 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10
 35 Minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

7. Procédé pour fabriquer un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réacteur nucléaire comprenant les étapes suivantes: réaliser un forgeage à chaud, un traitement thermique en solution, une
 5 extrusion à chaud et des cycles répétés de recuit et de laminage à froid d'un alliage de Zr comprenant, en poids, de 0,2 à 1,7 % de Sn, 0,18 à 0,6 % de Fe, 0,07 à 0,4 % de Cr, 0,05 à 1,0 % de Nb, et 0,01 à 0,1 % de Ta et le complément étant Zr et des impuretés
 10 accidentelles, la teneur en azote en tant qu'impureté accidentelle étant de 60 ppm ou moins, puis à réaliser un recuit final de relaxation des contraintes sur celui-ci; dans lequel

ledit recuit est réalisé dans un intervalle de
 15 températures comprises entre environ 550°C et environ 850°C pendant environ 1 à environ 4 heures, de sorte que le paramètre de recuit cumulé ΣA_i représenté par $\Sigma A_i = \Sigma t_i \cdot \exp(-40\,000/T_i)$ satisfait les relations:

-20 $\leq \log \Sigma A_i \leq -15$, et
 20 -18-10. $X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-3,75.(X_{Nb+Ta}-0,2)$
 dans lesquelles A_i représente le paramètre de recuit pour le i ème recuit,

t_i représente la durée du recuit (en heures) pour le i ème recuit,

25 T_i représente la température de recuit (K) pour le i ème recuit, et

X_{Nb+Ta} représente la concentration en Nb et Ta (% en poids) et

le paramètre de recuit cumulé ΣA_i vérifie de
 30 plus les relations:

lorsque $0,05 \leq X_{Nb+Ta} \leq 0,5$,

-20 $\leq \log \Sigma A_i \leq -15$, et

-18-10. $X_{Nb+Ta} \leq \log \Sigma A_i \leq -15-10.(X_{Nb+Ta}-0,2)$, ou

lorsque $0,5 < X_{Nb+Ta}$,

35 -20 $\leq \log \Sigma A_i \leq -18-2.(X_{Nb+Ta}-0,5)$.

8. Procédé selon la revendication 7 tel que le recuit avant le laminage à froid final soit réalisé dans un intervalle de températures comprises entre environ 650°C et environ 770°C pendant environ 1 à environ 10
5 Minutes suivi pas une trempe à l'aide d'argon gazeux.

9. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication
1.

10. Un gainage en alliage de Zr pour un
10 combustible de réaction nucléaire selon la revendication
2.

11. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication
3.

15 12. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication
4.

13. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication
20 5.

14. Un gainage en alliage de Zr pour un combustible de réaction nucléaire selon la revendication
6.

